

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-269643

(43)Date of publication of application : 15.10.1996

(51)Int.Cl.

C22C 38/00
B22D 11/00
B22D 11/06
B22D 11/124
B22D 11/22

(21)Application number : 07-097726

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO
LTD

(22)Date of filing : 29.03.1995

(72)Inventor : TOKUHARA HIROKI
ISHIGAKI NAOYUKI
YAMADA MICHIO
UEDA MASAMI
KOJIMA TAKASHI
WATANABE YUKIYOSHI

(54) CAST STRIP FOR R-FE-B MAGNETIC ALLOY AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PURPOSE: To prevent deterioration of the degree of orientation by regulating the thickness of an alloy, having a composition composed essentially of specific amounts of R, B, and Fe and also having a homogeneous structure composed of R2Fe14B type crystals of specific grain size and R-enriched phases, to a specific value.

CONSTITUTION: A molten alloy, composed essentially of, by atom, 10-25% R, 2-15% B, and 60-88% Fe, is cooled by means of a rapid cooling roll from a temp. between (liquidus temp. +5) and 300° C down to 700-1000° C cast strip temp. at $(2 \times 10^3 \text{ to } 7 \times 10^3)^\circ \text{C/sec}$ primary cooling rate. After detached from the roll, the cast strip is cooled down to a temp. not higher than the solidus temp. at $(50 \text{ to } 2 \times 10^3)^\circ \text{C/min}$ secondary cooling rate. A fine structure, in which R2Fe14B type dendrites or columnar crystals of 3-15 μm average minor axis crystalline grain size, containing fine crystals of <1 μm average minor axis crystalline grain size by $\leq 10\%$, and R-enriched phases of $\leq 5\mu\text{m}$ are dispersed, is formed. The thickness of the cast strip is regulated to 0.01-1mm. By the above procedure, the cast slab can be prevented from being reduced to fine powder at the time of crushing for forming a magnet, and also the oxidation of the resulting powder can be prevented. By this method, the alloy excellent in magnetic properties can be obtained.

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-269643

(43)公開日 平成8年(1996)10月15日

(51)Int.Cl. ⁹	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 2 2 C 38/00	3 0 3		C 2 2 C 38/00	3 0 3 D
B 2 2 D 11/00			B 2 2 D 11/00	A
11/06	3 6 0		11/06	3 6 0 B
11/124			11/124	L
11/22			11/22	B
審査請求 未請求 請求項の数2 F D (全 6 頁)				

(21)出願番号 特願平7-97726

(22)出願日 平成7年(1995)3月29日

(71)出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72)発明者 徳原 宏樹

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72)発明者 石垣 尚幸

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72)発明者 山田 道夫

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(74)代理人 弁理士 押田 良久

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 R-F e-B系磁石合金用鋳片及びその製造方法

(57)【要約】

【目的】 R-F e-B系磁石合金溶湯を急冷ロールにて铸造した磁石合金用鋳片における問題点を解消するため、配向度の低下及び磁石化の際の粉碎時の微粉化、粉末の酸化を防止でき、磁気特性の優れたR-F e-B系磁石合金鋳片が得られるように鋳片組織と磁気特性の関係を明確にしたR-F e-B系磁石合金鋳片とその製造方法の提供。

【構成】 R-F e-B系合金溶湯を真空溶解炉にて溶解した後、タンディシュ先端部のノズルより急冷ロールに注湯し、溶湯を急冷ロールにて特定の冷却速度にて1次冷却後、ロールより離脱した鋳片を固相線温度以下に特定の冷却速度にて2次冷却することにより、特定寸法の短軸結晶粒径を有するR₂F e₁₄B型樹枝状結晶あるいは柱状結晶と特定のRリッチ相とが微細に分散した均質組織からなる特定厚の急冷鋳片を得るもので、配向度の低下及び磁石化の際の粉碎時の微粉化、粉末の酸化を防止でき、磁気特性の優れたR-F e-B系磁石合金鋳片が得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 $R10 \sim 25 \text{ at} \%$ 、 $B2 \sim 15 \text{ at} \%$ 、 $Fe60 \sim 88 \text{ at} \%$ を主成分とし、短軸結晶粒径が $1.0 \mu\text{m}$ 未満の微細結晶を 10% 以下含有する平均短軸結晶粒径 $3 \mu\text{m} \sim 15 \mu\text{m}$ の $R_2Fe_{14}B$ 型樹枝状あるいは柱状結晶と、 $5 \mu\text{m}$ 以下の R -リッチ相とが、微細に分散した均質組織からなり、鋳片厚みが $0.01 \text{ mm} \sim 1.0 \text{ mm}$ からなることを特徴とする $R-Fe-B$ 系磁石合金用鋳片。

【請求項 2】 $R10 \sim 25 \text{ at} \%$ 、 $B2 \sim 15 \text{ at} \%$ 、 $Fe60 \sim 88 \text{ at} \%$ を主成分とする磁石合金溶湯を、合金の液相線温度（凝固開始温度） $+5^\circ\text{C} \sim +30^\circ\text{C}$ の温度より、急冷ロールにて $2 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec} \sim 7 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec}$ の1次冷却速度にて鋳片温度 $700^\circ\text{C} \sim 1000^\circ\text{C}$ に冷却後、ロール離脱後に前記鋳片を合金の固相線温度に（凝固完了温度）以下に $50^\circ\text{C}/\text{min} \sim 2 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{min}$ の2次冷却速度にて冷却し、短軸結晶粒径が $1.0 \mu\text{m}$ 未満の微細結晶を 10% 以下含有する平均短軸結晶粒径 $3 \mu\text{m} \sim 15 \mu\text{m}$ の $R_2Fe_{14}B$ 型樹枝状あるいは柱状結晶と、 $5 \mu\text{m}$ 以下の R -リッチ相とが、微細に分散した均質組織からなり、鋳片厚みが $0.01 \text{ mm} \sim 1.0 \text{ mm}$ からなる磁石合金用鋳片を得ることを特徴とする $R-Fe-B$ 系磁石合金用鋳片の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】この発明は、微細均質組織を有する $R-Fe-B$ 系磁石合金用鋳片及びその製造方法に係り、 $R-Fe-B$ 系合金溶湯を真空溶解炉にて溶解した後、タンディッシュ先端部のノズルより急冷ロールに注湯し、溶湯を急冷ロールにて特定の冷却速度にて1次冷却後、ロールより離脱した鋳片を固相線温度以下に特定の冷却速度にて2次冷却することにより、特定寸法の短軸結晶粒径を有する $R_2Fe_{14}B$ 型樹枝状結晶あるいは柱状結晶と特定の R -リッチ相とが微細に分散した均質組織からなる特定厚の急冷鋳片を得る $R-Fe-B$ 系磁石合金用鋳片及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】高性能永久磁石として代表的な $R-Fe-B$ 系永久磁石（特開昭59-46008号）は、三元系正方晶化合物の主相と R -リッチ相を有する組織にて高い磁石特性が得られ、一般家庭の各種電器製品から大型コンピュータの周辺機器まで幅広い分野で使用され、用途に応じた種々の磁石特性を発揮するよう種々の組成の $R-Fe-B$ 系永久磁石が提案されている。

【0003】 $R-Fe-B$ 系焼結磁石の残留磁束密度（ B_r ）を高めるためには、1）強磁性相であり、主相の $R_2Fe_{14}B$ 相の存在量を多くすること、2）焼結体の密度を主相の理論密度まで高めること、3）さらに、主相結晶粒の磁化容易軸方向の配向度を高めることが要

求される。

【0004】すなわち、前記1）項の達成のためには、磁石の組成を上記 $R_2Fe_{14}B$ の化学量論的組成に近づけることが重要であるが、上記組成の合金を溶解し、鋳型に鋳造した合金塊を、出発原料として $R-Fe-B$ 系焼結磁石を作製しようとする、合金塊に晶出した $\alpha-Fe$ や、 $R-rich$ 相が局部的に遍在していることなどから、特に微粉碎時に粉碎が困難となり、組成ずれを生ずる等の問題があった。

【0005】最近、鋳塊粉碎法による $R-Fe-B$ 系合金粉末の欠点たる結晶粒の粗大化、 $\alpha-Fe$ の残留、偏析を防止するために、 $R-Fe-B$ 系合金溶湯を双ロール法により、特定板厚の鋳片となし、前記鋳片を通常の粉末冶金法に従って、焼結磁石を製造する方法が提案（特開昭63-317643号公報）されている。

【0006】また、 $R-Fe-B$ 系合金溶湯を片ロールを用いて、横注ぎストリップキャスト法により永久磁石用急冷鋳片を製造する方法として、タンディッシュ先端部の水平方向に所要幅のノズルを設け、このノズルに隣接させて片ロールを水平方向に軸支配配置し、高周波溶解炉にて溶解した溶湯をタンディッシュに収容後、該ノズルから溶湯を水平配置されて連続回転する片ロール面に注湯して、急冷凝固させて急冷鋳片を製造する方法が提案（特開平5-222488号公報、特開平6-84624号公報）されている。

【0007】さらに、 $R-Fe-B$ 系磁石合金溶湯を急冷ロールにて鋳造した磁石合金用鋳片として、 R 、 T 、及び B を主成分とし、実質的に $R_2Fe_{14}B$ 相から構成された平均径が $3 \sim 50 \mu\text{m}$ の柱状結晶粒と R -リッチ相を主体とする結晶粒界相からなり、冷却方向の厚さが $0.1 \sim 2 \text{ mm}$ である磁石合金用鋳片が提案（特開平5-295490号公報）されている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】発明者らは、上記磁石合金用鋳片の鋳造組織について、詳細に調査したところ、鋳造条件により鋳造組織が大きく変化し、磁石化の際の粉碎時の微粉化に伴う粉末の酸化、および焼結磁石の配向度の低下が起こり、磁気特性に大きな影響を及ぼしていることを知見した。

【0009】この発明は、 $R-Fe-B$ 系磁石合金溶湯を急冷ロールにて鋳造した磁石合金用鋳片における問題点を解消するため、磁石化の際の粉碎時の微粉化に伴う粉末の酸化および焼結磁石の配向度の低下を防止でき、磁気特性の優れた $R-Fe-B$ 系焼結磁石が得られるように鋳片組織と磁気特性の関係を明確にした $R-Fe-B$ 系磁石合金鋳片の提供と、当該磁石合金鋳片の製造方法の提供を目的としている。

【0010】

【課題を解決するための手段】発明者らは、前記磁石合金用鋳片組織と焼結磁石の磁気特性の関係を種々検討し

10

20

30

40

50

た結果、前記鑄片には種々の大きさや方向を有する樹枝状もしくは柱状結晶が存在し、微細な樹枝状もしくは柱状結晶が、磁石化の際の粉碎時の微粉化に伴う粉末の酸化および焼結磁石の配向度の低下に大きな影響を及ぼし、前記鑄片内の微細樹枝状もしくは柱状結晶を低減することが重要であることを知見し、更に検討したところ、かかる鑄片内の微細樹枝状もしくは柱状結晶を低減した鑄片を得るためには、特定温度の合金溶湯をノズルより急冷ロールに注湯して、特定の冷却速度にて1次冷却した後、ロールを離脱した鑄片を固相線温度以下に特定の冷却速度にて2次冷却することが重要であることを知見し、この発明を完成した。

【0011】すなわち、この発明は、 $R10 \sim 25 \text{ at} \%$ 、 $B2 \sim 15 \text{ at} \%$ 、 $Fe60 \sim 88 \text{ at} \%$ を主成分とし、短軸結晶粒径が $1.0 \mu\text{m}$ 未満の微細結晶を 10% 以下含有する平均短軸結晶粒径 $3 \mu\text{m} \sim 15 \mu\text{m}$ の $R_2Fe_{14}B$ 型樹枝状あるいは柱状結晶と、 $5 \mu\text{m}$ 以下の R -リッチ相とが、微細に分散した均質組織からなり、鑄片厚みが $0.01 \text{ mm} \sim 1.0 \text{ mm}$ からなることを特徴とする $R-Fe-B$ 系磁石合金用鑄片である。

【0012】また、この発明は、 $R10 \sim 25 \text{ at} \%$ 、 $B2 \sim 15 \text{ at} \%$ 、 $Fe60 \sim 88 \text{ at} \%$ を主成分とする磁石合金溶湯を、合金の液相線温度（凝固開始温度） $+5^\circ\text{C} \sim +300^\circ\text{C}$ の温度より、急冷ロールにて $2 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec} \sim 7 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec}$ の1次冷却速度にて鑄片温度 $700^\circ\text{C} \sim 1000^\circ\text{C}$ に冷却後、ロール離脱後に前記鑄片を合金の固相線温度に（凝固完了温度）以下に $50^\circ\text{C}/\text{min} \sim 2 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{min}$ の2次冷却速度にて冷却し、短軸結晶粒径が $1.0 \mu\text{m}$ 未満の微細結晶を 10% 以下含有する平均短軸結晶粒径 $3 \mu\text{m} \sim 15 \mu\text{m}$ の $R_2Fe_{14}B$ 型樹枝状あるいは柱状結晶と、 $5 \mu\text{m}$ 以下の R -リッチ相とが、微細に分散した均質組織からなり、鑄片厚みが $0.01 \text{ mm} \sim 1.0 \text{ mm}$ からなる磁石合金用鑄片を得ることを特徴とする $R-Fe-B$ 系磁石合金用鑄片の製造方法である。

【0013】

【作用】この発明は、 $R-Fe-B$ 系合金溶湯を真空溶解炉にて溶解した後、タンディッシュ先端部のノズルより急冷ロールに注湯し、溶湯を急冷ロールにて特定の冷却速度で特定の温度まで1次冷却後、ロールより離脱した鑄片を固相線温度以下に特定の冷却速度にて2次冷却することにより、特定寸法の短軸結晶粒径を有する $R_2Fe_{14}B$ 型樹枝状結晶あるいは柱状結晶と特定の R -リッチ相とが微細に分散した均質組織からなる特定厚の急冷鑄片を得ることを特徴とする。

【0014】すなわち、冷却鑄片の鑄造組織は、溶湯が冷却ロールに接触した瞬間に決定され、溶湯と冷却ロールの接触長が短く、ロール周速が速い程、板厚は薄くなり微細化されるが、現実には急冷ロールを離れる時点での鑄片の温度およびその後の冷却速度によって、鑄造組

織が変化することを見出した。一般に合金溶湯は液相線温度で凝固が開始し、固相線温度で凝固が完了する。しかし、この液相線から固相線温度までの固液共存領域を通過する時間が長いと鑄造組織は粗大化する。 $R-Fe-B$ 系合金では前記液相線温度と固相線温度の差が約 500°C と大きいため、特に前記粗大化は顕著である。

【0015】すなわち、急冷ロールを離脱した直後の鑄片温度が固相線以上でも、その後の冷却が十分速ければ微細組織が得られるが、その後の冷却速度が遅く、固液共存領域を通過する時間が長くなると、結晶粒は成長し、焼結磁石の iHc の低下を招来する。発明者らが前記通過時間と結晶粒径の関係を調べた結果、固液共存領域の通過時間が僅か数分でも結晶粒径が成長し、例えば 800°C から固相線温度までの通過時間が3分の場合、結晶粒径は $20 \sim 30 \mu\text{m}$ に成長する。

【0016】またロールでの冷却を強化して、ロール離脱時の鑄片を固相線温度以下にすることができるが、この場合、前記結晶粒の粗大化は起こらないが、ロールによる冷却の速度が速すぎ結晶が微細化されすぎて、焼結磁石の Br の低下を招来する。すなわち、鑄片の結晶粒径を微細化させすぎないためには、合金溶湯を急冷ロールにて特定の冷却速度で特定の温度まで1次冷却し、さらにその後、急冷ロールより離脱した鑄片をその微細組織を粗大化させないためには固相線温度以下に特定の冷却速度で2次冷却する2段階冷却法が重要であることを知見したのである。

【0017】この発明の鑄片の製造方法において、急冷ロールにて冷却凝固する合金溶湯の温度を液相線温度（凝固開始温度） $+5^\circ\text{C} \sim +300^\circ\text{C}$ に限定した理由は、液相線温度 $+5^\circ\text{C}$ 未満ではノズル部で合金溶湯が凝固して、ノズルづまりを起こし、鑄造できなくなるので好ましくなく、また、液相線温度 $+300^\circ\text{C}$ を越えると、溶湯温度が高すぎて、ロールでの冷却が不十分となり、平均短軸結晶粒径が $15 \mu\text{m}$ を越え、また、ロールに接触する溶湯温度が高いため、冷却ロールの寿命が短くなるので、好ましくない。

【0018】この発明において、1次冷却速度は

$\{ (\text{ロール接触する溶湯温度}) - (\text{ロール離脱時の鑄片温度}) \} / (\text{ロール接触時間})$

にて定義され、1次冷却速度が $2 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec}$ 未満ではロールによる溶湯の冷却が不十分で、平均短軸結晶粒径が $15 \mu\text{m}$ を越えて好ましくなく、また、 $7 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec}$ を越えると、平均短軸結晶粒径が $3 \mu\text{m}$ 未満と微細になり、また平均短軸結晶粒径が $3 \mu\text{m}$ 以上でも、粒径 $1 \mu\text{m}$ 以下の微細結晶が 10% を越えるので好ましくない。また、1次冷却速度の好ましい範囲は、 $3 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec} \sim 6 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{sec}$ である。

【0019】1次冷却後の鑄片温度を $700^\circ\text{C} \sim 1000^\circ\text{C}$ に限定した理由は、 700°C 未満では平均短軸結晶粒径が $3 \mu\text{m}$ 未満と微細になり、また、平均短軸結晶粒

径が $3\mu\text{m}$ 以上でも、 $1\mu\text{m}$ 以下の微細結晶が10%を越えるため好ましくなく、さらに、 1000°C を超えると、鑄片のロール離脱後、固相線温度以下まで冷却する時間が長くなり平均短軸結晶粒径が $15\mu\text{m}$ を超えて、粗大化し、又固相線温度以下に短時間に冷却するためには設備費のかさむ2次冷却装置が必要となるので、好ましくない。更に、好ましい1次冷却後の鑄片温度範囲は、 $700^\circ\text{C}\sim 900^\circ\text{C}$ である。

【0020】この発明において、ロール離脱後の鑄片の冷却を固相線温度以下に限定した理由は、固相線温度を超えた固液共存領域では、Rリッチな液相が存在し、僅か数分の保持でも結晶が成長し粗大化して、磁石特性、特に保磁力を低下させるので、結晶が成長しない、すなわち、液相が全く存在しない固相線温度以下まで冷却する必要がある。

【0021】この発明において、2次冷却速度は、
 $\{(\text{ロール離脱時鑄片温度}) - (\text{固相線温度})\} / (\text{冷却時間})$

にて定義づけられ、2次冷却速度が $5^\circ\text{C}/\text{min}$ 未満では固液共存領域を通過に要する時間が長くなり、結晶が成長し粗大化するため好ましくない。また、2次冷却速度は速ければ速い程、固液共存領域の通過に要する時間が短くなり好ましいが、量産的には設備コスト等を考慮して、 $2 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{min}$ 以内が好ましい。また、2次冷却速度の好ましい範囲は、 $100 \sim 2 \times 10^3^\circ\text{C}/\text{min}$ である。

【0022】この発明における2次冷却は、急冷ロールと鑄片収容箱間にArガス等の不活性ガス冷却、あるいはコンベア又はベルトにて移送中にて冷却したり、更に鑄片収容箱内に不活性ガス冷却して調節することができ、また、2対の回転するベルトによって、鑄片を挟んで冷却したり、液体Arに直接投入する方法などがあり、これらの方法の組合せでもよい。また、充分な2次冷却速度を実現するためには、冷却ロールと鑄片収容箱間の距離を十分とる必要があり、その距離はロール周速度の $1/20$ 以上が好ましい。例えば、ロール周速度が $100\text{m}/\text{min}$ の場合は5m以上である。

【0023】この発明の磁石合金用鑄片において、短軸結晶粒径は樹枝状もしくは柱状結晶の長軸方向に対して垂直な方向の短軸の長さを意味する。磁石合金用鑄片の $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型樹枝状もしくは柱状結晶の平均短軸結晶粒径を $3\mu\text{m} \sim 15\mu\text{m}$ に限定した理由は、 $3\mu\text{m}$ 未満では粉末化した時に酸化しやすくなり、磁気特性の劣化を招来し、また粉末化した合金粉末が多結晶体となり、プレス成形時の配向度が乱れ、磁石のBrの低下を招来し、さらに、 $15\mu\text{m}$ を超えると焼結磁石の結晶粒径が大きくなり、保磁力が低下するため、好ましくない。

【0024】また、短軸結晶粒径が $1.0\mu\text{m}$ 未満の微細結晶の含有を10%以下に限定した理由は、10%を越える含有では粉末化した合金粉末中の多結晶体の割合

が増加し、プレス成形時の配向度が乱れ、磁石のBrが低下するので好ましくない。

【0025】この発明の磁石合金用鑄片の微細に分散した均質組織における、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型樹枝状結晶、柱状結晶、Rリッチ相の各量比率は、 $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型樹枝状結晶もしくは柱状結晶は90%以上が好ましく、更に好ましくは95%以上であり、又Rリッチ相は3~10%が好ましい。この発明において、固相線温度はR-Fe-B系磁石組成による変動するが、磁石組成が $14\text{Nd}-79\text{Fe}-7\text{Ba}\%$ 磁石の場合は、固相線温度は 665°C である。

【0026】以下にこの発明によるR-Fe-B系永久磁石を製造する合金鑄片の合金組成の限定理由を説明する。この発明の永久磁石用合金鑄片に含有される希土類元素Rはイットリウム(Y)を包含し、軽希土類及び重希土類を包含する希土類元素である。Rとしては、軽希土類をもって足り、特にNd, Prが好ましい。また通常Rのうち1種をもって足りるが、実用上は2種類以上の混合物(ミッシュメタル、ジジム等)を入手上の便宜等の理由により用いることができ、Sm, Y, La, Ce, Gd等は他のR、特にNd, Pr等との混合物として用いることができる。なお、このRは純希土類元素でなくてもよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するものでも差し支えない。

【0027】Rは、R-Fe-B系永久磁石を製造する合金鑄片の必須元素であって、10原子%未満では高磁気特性、特に高保磁力が得られず、25原子%を越えると残留磁束密度(Br)が低下して、すぐれた特性の永久磁石が得られない。よって、Rは10原子%~25原子%の範囲とする。

【0028】Bは、R-Fe-B系永久磁石を製造する合金鑄片の必須元素であって、2原子%未満では高い保磁力(iHc)は得られず、15%原子を越えると残留磁束密度(Br)が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Bは2原子%~15原子%の範囲とする。

【0029】Feは、R-Fe-B系永久磁石を製造する合金鑄片の必須元素であって、60原子%未満では残留磁束密度(Br)が低下し、88%原子を超えると高い保磁力が得られないので、Feは60原子%~88原子%に限定する。また、Feの一部をCo、Niの1種又は2種で置換可能であり、これは永久磁石の温度特性を向上させる効果及び耐食性を向上させる効果が得られるためであるが、Co、Niの1種又は2種はFeの50%を越えると高い保磁力が得られず、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Co、Niの1種又は2種の置換量はFeの50%を上限とする。

【0030】この発明による合金鑄片において、高い残留磁束密度と高い保磁力を共に有するすぐれた永久磁石を得るためには、R12原子%~16原子%、B4原子

%~12原子%、Fe72原子%~84原子%が好ましい。また、この発明による合金鑄片は、R、B、Feの他、酸素、C、Ca、Mgなどの工業的生産上不可避免の不純物の存在を許容できるが、Bの一部を4.0原子%以下のC、3.5原子%以下のP、2.5原子%以下のS、3.5原子%以下のCuのうち少なくとも1種、合計量で4.0原子%以下で置換することにより、磁石合金の製造性改善、低価格化が可能である。特に、前記Bの一部を4.0原子%以下のCで置換することにより、焼結磁石の耐食性が向上する。

【0031】さらに、前記R、B、Fe合金あるいはCoを含有するR-Fe-B合金に、9.5原子%以下のAl、4.5原子%以下のTi、9.5原子%以下のV、8.5原子%以下のCr、8.0原子%以下のMn、5原子%以下のBi、12.5原子%以下のNb、10.5原子%以下のTa、9.5原子%以下のMo、9.5原子%以下のW、2.5原子%以下のSb、7原子%以下のGe、35原子%以下のSn、5.5原子%以下のZr、5.5原子%以下のHfのうち少なくとも1種添加含有させることにより、永久磁石合金の高保磁力が可能になる。この発明のR-Fe-B系永久磁石において、結晶相は主相が正方晶であることが不可欠であり、特に、微細で均一な合金粉末を得て、すぐれた磁気特性を有する焼結永久磁石を作製するのに効果的である。

【0032】この発明において、樹枝状あるいは柱状結晶とR-リッチ相とが微細に分散した均質組織を有する磁石合金鑄片の板厚を0.01mm~10mmに限定した理由は、0.01mm未満では急冷効果が大となり、結晶粒径が3μmより小となり、粉末化した際に酸化しやすくなるため、磁気特性の劣化を招来するとともに、微粉砕後の粒子が多結晶となり配向度が低下しBrが低下するので好ましくなく、また10mmを越えると、冷却速度が遅くなり、α-Feが晶出しやすく、結晶粒径が大となり、Ndリッチ相の偏在も生じるため、磁気特性、特に保磁力が低下するので好ましくないことによる。より好ましくは板厚0.05mm~0.8mmである。

【0033】この発明のストリップキャスティング法により得られた特定組成のR-Fe-B系合金の断面組織は、主相のR₂Fe₁₄B結晶が従来の鑄型に鑄造して得られた鑄塊のものに比べて、約1/10以上も微細であるが、前述のごとく短軸結晶粒径が1.0μm未満の微細結晶を10%以下含有する平均短軸結晶粒径が3μm~15μmである。

【0034】

【実施例】

実施例1

Ar減圧200torr雰囲気中で溶湯温度1300℃の31Nd-1.0Dy-1.1B-3.0Co-残Fe

(wt%)組成(液相線温度1170℃)の合金溶湯を、ノズルより回転数120rpmの外径300μmの水冷Cu片ロール表面に、1次冷却速度5×10³℃/secにて鑄片温度800℃に冷却後、ロール離脱後に急冷ロールと鑄片収容箱間(距離8m)で鑄片の上下から圧力5kg/cm²、流量500l/minのArガスを吹きつけ、さらに鑄片収容箱内にて圧力5kg/cm²、流量500l/minのArガスを吹きつけ、鑄片を600℃(固相線温度660℃)まで200℃/minの2次冷却速度にてガス冷却して厚み0.38mmの鑄片を得た。

【0035】得られた鑄片の断面を鏡面研磨して光学顕微鏡(倍率400倍)で観察し、結晶500個について短軸結晶粒径を線分法にて測定した結果、短軸結晶粒径が1.0μm以下の微細結晶を3%含有の平均短軸結晶粒径4.5μmのR₂Fe₁₄B型樹枝状結晶と5μm以下のR-リッチ相が微細に分散した均質組織を有していた。得られた鑄片を粗粉砕後、ジェットミル粉砕にて微粉砕して平均粉末粒径3.0μmの微粉末を得た。前記粉末を磁場強度15kOeにてプレス圧1ton/cm²にて成型後、真空にて1040℃に4時間焼結後、600℃に1時間の時効処理を行い、得られた試験片の磁気特性及び平均結晶粒径を表1に示す。

【0036】比較例1

実施例1と同一組成の合金溶湯を用い、実施例1と同一ロールを使用し、1次冷却速度7500℃/secにて冷却し、ロール離脱時の鑄片温度は630℃であった。さらに、ロール離脱後の鑄片を200℃/minの2次冷却速度にてガス冷却して鑄片厚0.30mmの鑄片を得た。得られた鑄片の実施例1と同一方法にて短軸結晶粒径を測定した結果、短軸結晶粒径1μm以下の微細結晶を18%含有の平均短軸結晶粒径3.2μmのR₂Fe₁₄B型樹枝状結晶を得た。得られた鑄片を平均粉末粒径2.9μmに微粉砕する以外は実施例1と同一条件にて焼結磁石を得た。磁気特性及び平均結晶粒径の測定結果を表1に示す。

【0037】比較例2

実施例1と同一組成の合金溶湯を用い、実施例1と同一ロールを使用し、1次冷却速度1600℃/secで冷却し、鑄片温度は1100℃であった。さらに、ロール離脱後の鑄片を600℃まで100℃/minの2次冷却速度でガス冷却して鑄片厚0.43mmの鑄片を得た。実施例1と同一方法にて短軸結晶粒径を測定した結果、短軸結晶粒径1μm以下の微細結晶は0%であったが、平均短軸結晶粒径は32μmであった。得られた鑄片を平均粉末粒径3.2μmに微粉砕する以外は実施例1と同一条件にて焼結磁石を得た。磁気特性及び平均結晶粒径の測定結果を表1に示す。

【0038】比較例3

実施例1と同一組成の合金溶湯を用い、実施例1と同一

のロールを使用し、2次冷却速度を $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ にする以外は実施例1と同一の製造条件にて鋳片厚 $0.38\mu\text{m}$ の鋳片を得た。実施例1と同一方法にて短軸結晶粒径を測定した結果、短軸結晶粒径 $1\mu\text{m}$ 以下の微細結晶は 0.5% であったが、平均短軸結晶粒径 $21\mu\text{m}$ であった。得られた鋳片を平均粉末粒径 $3.4\mu\text{m}$ に微粉碎する以外は実施例1と同一条件にて焼結磁石を得た。焼結磁石の磁気特性及び平均結晶粒径の測定結果を表1に示す。

【0039】比較例4

実施例1と同一組成の合金溶湯、及び同一のロールを使用し、2次冷却速度 $250^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で 750°C までガ*

*ス冷却した後、 600°C まで $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で冷却する以外は実施例1と同一の製造条件にて鋳片厚 $0.39\mu\text{m}$ の鋳片を得た。実施例1と同一方法にて短軸結晶粒径を測定した結果、短軸結晶粒径 $1\mu\text{m}$ 以下の微細結晶は 0.8% であったが、平均短軸粒径は $18\mu\text{m}$ であった。得られた鋳片を平均粉末粒径 $3.3\mu\text{m}$ に微粉碎する以外は実施例1と同一条件にて焼結磁石を得た。得られた焼結磁石の磁気特性及び平均結晶粒径の測定結果を表1に示す。

【0040】

【表1】

	焼結磁石の磁気特性			焼結磁石の平均結晶粒径
	Br (kG)	(BH)max (MGOe)	iHc (kOe)	
実施例1	13.26	42.6	16.4	6.2 μm
比較例1	12.80	39.7	15.8	6.3 μm
比較例2	13.26	42.6	13.4	12.8 μm
比較例3	13.24	42.5	13.7	10.1 μm
比較例4	13.22	42.4	14.2	9.6 μm

【0041】

【発明の効果】この発明は、 $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系合金溶湯を真空溶解炉にて溶解した後、タンディシュ先端部のノズルより急冷ロールに注湯し、溶湯を急冷ロールにて特定の冷却速度にて1次冷却後、ロールより離脱した鋳片を30固相線温度以下に特定の冷却速度にて2次冷却すること※

※により、特定寸法の短軸結晶粒径を有する $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型樹枝状結晶あるいは柱状結晶と特定のRリッチ相とが微細に分散した均質組織からなる特定厚の急冷鋳片を得るもので、配向度の低下及び磁石化の際の粉碎時の微粉化、粉末の酸化を防止でき、磁気特性の優れた $\text{R}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石合金鋳片が得られる。

フロントページの続き

(72)発明者 植田 雅巳
大阪府吹田市南吹田2丁目19番1号 住友
特殊金属株式会社吹田製作所内

(72)発明者 児嶋 尊
大阪府吹田市南吹田2丁目19番1号 住友
特殊金属株式会社吹田製作所内

(72)発明者 渡辺 幸良
大阪府吹田市南吹田2丁目19番1号 住友
特殊金属株式会社吹田製作所内